

Yanıt Yüzey Metodu Analizi: Alkali Elektroliz ile Hidrojen Gazı Üretimi

Ceyla ÖZGÜR*¹ ORCID 0000-0002-4072-6784

Mehmet Erman MERT² ORCID 0000-0002-0114-8707

¹Adana Alparslan Türkeş Bilim ve Teknoloji Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Enerji Sistemleri Mühendisliği Bölümü, Adana

²Adana Alparslan Türkeş Bilim ve Teknoloji Üniversitesi, İleri Teknolojiler Uygulama ve Araştırma Merkezi, Adana

Geliş tarihi: 25.04.2023

Kabul tarihi: 13.06.2023

Atıf şekli/ How to cite: ÖZGÜR, C., MERT, M.E., (2023). Yanıt Yüzey Metodu Analizi: Alkali Elektroliz ile Hidrojen Gazı Üretimi. Çukurova Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi Dergisi, 38(2), 451-462.

Öz

Bu çalışmada alkali elektroliz hücresi ile hidrojen gazı üretimi için laboratuvar ölçekli, iki elektrotlu bir sistem kurulmuştur. Anot olarak soy metal olan platin kullanılırken, katot olarak nikel köpük elektrotlar galvanostatik yöntemle nikel-bakır-molibden (NiCuMo) ile modifiye edilmiştir. Sisteme farklı uygulama potansiyelleri (2,4 V; 2,7 V ve 3 V) uygulanmış ve farklı süreler için elde edilen hidrojen gazı hacimleri belirlenmiştir. Deneysel bulgulara göre 30 dakikalık elektroliz işlemi sonrasında artan uygulama potansiyellerine göre sırasıyla; 77,30; 90,67 ve 105,08 mL hidrojen gazı üretilmiştir. Söz konusu sistemin optimizasyonu için yanıt yüzey metodu analizi (RSM) kullanılmıştır. Sistem etkinlik analizinde elektroliz potansiyeli ve süre değişkeni olarak seçilerek hidrojen gazı üretim hacmine ve yük miktarına etkileri araştırılmıştır. Hidrojen hacmi ve yük miktarı için tahmini R² değerleri sırasıyla 0,9956 ve 0,9955 olarak belirlenmiştir. Hidrojen gazı hacim ve yük değerleri için %Hata sırasıyla 2,71 ve 0,5'dir.

Anahtar Kelimeler: Yanıt yüzey metodu, Alkali elektroliz, Hidrojen, Optimizasyon

Response Surface Method Analysis: Hydrogen Gas Production by Alkaline Electrolysis

Abstract

In this study, the laboratory scale, two-electrode system was established for the production of hydrogen gas with an alkaline electrolysis cell. The noble metal platinum was utilized as the anode and the nickel foam electrodes which were modified with nickel-copper-molybdenum (NiCuMo) by galvanostatic method, was used as the cathode. Different operation potentials (2.4 V; 2.7 V and 3 V) were applied to the system and the hydrogen gas volumes obtained for variable duration times were determined. According to the results of the study, after 30 minutes of electrolysis, 77.30, 90.67, and 105.08 mL of hydrogen gas were produced, respectively, based on the rising application potentials. The surface response method analysis (RSM) was

*Sorumlu yazar (Corresponding Author): Ceyla ÖZGÜR, cozgur@atu.edu.tr

used for the optimization of the system. In the system efficiency analysis, the electrolysis potential and time were chosen as variables and their effects on the hydrogen gas production volume and the amount of charge were investigated. The R^2 values of hydrogen volume and charge amount were 0.9956 and 0.9955, respectively. The error% was determined as 2.71 and 0.5 for the hydrogen gas volume and charge values, respectively.

Keywords: Response surface method, Alkaline electrolysis, Hydrogen, Optimization

1. GİRİŞ

Dünya genelinde artan enerji gereksinimlerinin çok sayıda nedeni vardır. Bunlar arasında, nüfus artışı, sanayileşme, kentleşme, yeni teknoloji atılımları, iklim değişikliği vb. sayılabilir. Dünya nüfusu her geçen gün artmakta ve bu durum enerji talebini arttırmaktadır [1]. Sanayileşme, özellikle gelişmekte olan ülkelerde hızla artan bir enerji talebiyle birlikte gelmektedir. Endüstriyel faaliyetler, üretim ve fabrika işletmeleri gibi enerji yoğun faaliyetlerin artması da enerji talebini arttırmaktadır. Küresel olarak kentleşme hızla devam etmektedir, kentlerde daha yoğun nüfuslar, ulaşım, aydınlatma, ısıtma/soğutma ve diğer enerji yoğun faaliyetler için daha fazla enerji ihtiyacı anlamına gelmektedir. Ayrıca teknolojinin hızla gelişmesi de enerji tüketimini arttırmaktadır. Mobil cihazlar, bilgisayarlar, yapay zeka, araçlar ve diğer cihazlar için daha fazla enerji ihtiyacı duyulmaktadır. İklim değişikliği nedeniyle artan sıcaklık, sera gazı emisyonları, yoğunlaşan nüfus ve değişen yaşam tarzları enerji talebini arttırmaktadır. Örneğin, artan sıcaklıklar klima kullanımını vb sebebiyle tüketim arttırmaktadır [2]. Kısaca bu ve benzer sebepler birlikte enerji talebinin artmasına neden olmaktadır. Dünya genelinde enerji talebi, çeşitli kaynaklardan karşılanır. Bu kaynaklar arasında en büyük oran hala fosil yakıtlara aittir, fakat sınırlı rezervler ve zararlı çevresel etkileri sebebiyle alternatif kaynaklara yönelim her geçen gün hızla artmaktadır. Güneş enerjisi, rüzgar enerjisi, hidroelektrik enerji, jeotermal enerji ve biyokütle enerjisi gibi yenilenebilir enerji kaynakları, enerji talebinin bir bölümünü karşılamaktadır [3,4]. Bu kaynaklar, sürdürülebilir bir enerji üretimi sağlamak için önemlidir. Nükleer enerji, elektrik üretimi için kullanılan bir diğer önemli kaynaktır. Nükleer enerji, düşük karbonlu enerji sağlarken, nükleer atık ve nükleer kazalar riskleri nedeniyle tartışmalı bir konudur. Hidrojen,

yakıt hücresi teknolojisi ve endüstriyel prosesler için kullanılan bir diğer alternatif enerji kaynağıdır. Hidrojen üretimi, enerji yoğun bir süreçtir ve günümüzde daha çok fosil yakıtlar kullanılarak gerçekleştirilir [5,6]. Fakat hidrojen gazı üretiminde yüksek saflık ve düşük karbon ayak izi hedefleri için en uygun yöntem suyun elektrolizidir[1]. Suyun elektrolizi, suyun elektrik akımı kullanılarak hidrojen ve oksijene ayrışması işlemidir. Elektrotların birinde (katot) hidrojen, diğerinde (anot) ise oksijen gazı açığa çıkar. Bu şekilde, yüksek saflıkta hidrojen gazı üretimi gerçekleştirilir. Suyun elektrolizi, temiz bir enerji kaynağıdır. Çünkü hidrojen gazı, yanma sonucu sadece su buharına dönüşür ve çevreye zararlı hiçbir atık bırakmaz [7]. Suyun elektrolizi ile hidrojen gazı üretimi, yenilenebilir bir enerji kaynağıdır. Güneş enerjisi veya rüzgar enerjisi gibi yenilenebilir enerji kaynakları kullanılarak hidrojen gazı üretilebilir [8]. Hidrojen gazı, sıkıştırılmış veya sıvılaştırılmış formda depolanabilir. Bu özelliği, elektrik şebekelerinde depolama sorunlarını çözmede büyük bir fırsat sunar. Hidrojen gazı, birçok farklı amaç için kullanılabilir. Örneğin, yakıt hücreleri, endüstriyel üretim, kimyasal üretim ve araçlarda yakıt olarak kullanılabilir. Hidrojen gazı, düşük karbonlu bir enerji kaynağıdır. Fosil yakıtların yerini alarak, dünya genelinde sera gazı emisyonlarının azaltılmasına yardımcı olabilir [9]. Bu nedenlerden dolayı, hidrojen gazı üretimi suyun elektrolizi yöntemi ile giderek daha popüler hale gelmektedir. Ancak, hidrojen gazı üretimi, enerji gerektiren bir süreçtir ve elektroliz ekipmanları ve teknolojisi henüz gelişme aşamasındadır [10]. Bu dezavantajların giderilmesi için elektrokatalitik etkinliği yüksek, düşük aşırı gerilimli, ulaşılabilir maliyetlerde elektrotların üretimi çok önemlidir. Bu amaçla çoğunlukla platin (Pt), nikel (Ni) ve paslanmaz çelik (SS) katotlar kullanılmaktadır [11-13]. Platin katotlar, hidrojen gazı üretimi için en etkin katot türlerinden biridir. Platin, yüksek

elektrokatalitik aktivitesi sayesinde, hidrojen gazı üretimi için ideal bir malzemedir. Ancak, oldukça pahalı bir malzemedir, bu nedenle daha ucuz katot malzemeleri araştırılmaktadır. Nikel katotlar, platin katotlara göre daha ucuzdur. Ayrıca, hidrojen gazı üretimi için platin katotlara yakın performans gösterirler. Ancak, nikelin elektrokatalitik aktivitesi platin kadar yüksek değildir fakat çeşitli modifikasyonlar ile nikel elektrotların etkinliklerinin artırıldığı bilinmektedir. Paslanmaz çelik katotlar da hidrojen gazı üretimi için kullanılabilir. Paslanmaz çelik, platin ve nikel katotlara göre daha ucuz bir malzemedir. Ancak, hidrojen gazı üretimi için paslanmaz çelik katotların performansı, platin ve nikel katotlara göre oldukça düşüktür [14]. Bu sebeple fiyat performans analizinde nikel ön plana çıkmaktadır. Fakat bu elektrotların etkinliğinin artırılması için bazı stratejiler geliştirilmelidir. Yüzey alanının artırılması önemli bir parametredir, çünkü elektrokatalitik aktivitenin artmasına yol açabilir [15]. Bu amaçla, nikel elektrotlar genellikle pürüzlü yüzeyler şeklinde dizayn edilir, sünger elektrotlar vb. morfolojik yapılar kullanılır veya elektrot yüzeyi elektroaktif nanopartiküller ile kaplanır [16-18]. Örneğin, katot malzemesine metal ya da karbon nanopartiküller eklenerek elektrokatalitik aktivite artırılabilir veya elektrot yüzeyi plazma işlem veya kimyasal işlemler ile modifiye edilebilir [19-21]. Sonuç olarak, nikel elektrotların elektrokatalitik aktivitesini artırmak için yüzey alanının artırılması, katot malzemesinin modifiye edilmesi, yüzey özelliklerinin değiştirilmesi, elektrolitik çözeltinin değiştirilmesi ve elektrot yapısının değiştirilmesi gibi stratejiler kullanılabilir [3,19,22]. Yang ve arkadaşları [15] elektroliz ile suyun ayrıştırılması için hidrotermal yöntem ile morfoloji kontrollü nanokristal β -Ni(OH)₂/NF (nikel hidroksit/nikel köpük) elektrokatalizörü geliştirdi. Çalışma, β -Ni(OH)₂/NF katalizörünün alkali ortamda hidrojen gazı oluşum reaksiyonu (HER) ve oksijen gazı oluşum reaksiyonu (OER) için morfolojiye bağlı elektrokatalitik özelliklerini araştırmayı amaçlamıştır. Aynı zamanda β -Ni(OH)₂/NF katalizörünün morfolojiye bağlı elektrokatalitik özelliklerinin mekanizması ile ilişkilendirilmiştir. Krishnan ve arkadaşları [23] "HER" için nikel bazlı elektro/fotokatalizörler alanındaki son gelişmeleri gözden geçirdi.

Çalışmada, nikel bazlı katalizörlerin sentezi, karakterizasyonu ve elektro/fotokatalitik etkinlikleri özetlenmiştir. Çalışma ayrıca, yenilenebilir enerji depolama ve dönüştürme gibi pratik uygulamalar için nikel bazlı elektro/fotokatalizörlerin geliştirilmesiyle ilgili zorlukları ve fırsatları da vurgulamaktadır. Çalışmanın genel amacı, gelişmiş katalitik aktivite, kararlılık ve dayanıklılık için nikel bazlı elektro/fotokatalizörlerin tasarımı ve optimizasyonu üzerinedir. Ayrıca çalışma, nikel bazlı katalizörlerin elektro/fotokatalitik performansının altında yatan mekanizmaları vurgulamakta ve performanslarını yöneten temel ilkeler hakkında fikir vermektedir. Genel olarak, çalışma, HER için nikel bazlı elektro/fotokatalizörlerin geliştirilmesindeki son çalışmalara kapsamlı bir genel bakış sağlar ve verimli ve uygun maliyetli su ayırma teknolojilerinin geliştirilmesi için araştırma alanları tanımlar.

Fakat yalnızca mühendislik tasarımlar ve iyileştirmeler ile elektroliz sisteminin etkinlik artırılması söz konusu olmayabilir. Elektroliz sistemi optimizasyonu için hesaplamalı bilgisayar programları mevcuttur ve bu programlar, elektrokimyasal reaksiyonların ve elektroliz işlemlerinin matematiksel modellerini kullanarak, sistem performansını tahmin edebilir ve optimize edebilirler. Bu programların bazıları, özellikle hidrojen üretimi için tasarlanmıştır ve elektroliz işlemi boyunca sistemdeki sıcaklık, basınç, akım yoğunluğu ve elektrot potansiyeli gibi parametreleri hesaplayabilir. Programlar ayrıca, farklı elektrot koşulları gibi faktörlerin sistem performansına etkisini analiz edebilirler. Bu programlar arasında COMSOL Multiphysics, ANSYS Fluent, Aspen Plus, HSC Chemistry ve ECEL-2D gibi yazılımlar yer almaktadır [24-27]. Literatürde kullanılan elektroliz sisteminin "response surface methodology", "yanıt yüzey metodu" (RSM) analizi, sistemin performansını artırmak ve optimize etmek için kullanılan bir tasarım ve analiz yöntemidir [28]. RSM analizinin avantajları oldukça fazladır. RSM, az sayıda deney ile yüksek doğruluk sağlayabilir. Bu durum, deney maliyetlerini ve deney zamanını azaltırken, sistemin performansını etkileyen önemli

parametreleri belirlemeye yardımcı olur. RSM, aynı anda çoklu parametre optimizasyonunu gerçekleştirebilir. Bu durum, elektroliz sistemi için birden fazla parametrenin eşzamanlı olarak optimize edilmesine olanak sağlar. RSM, elektroliz sistemi için matematiksel model oluşturmayı kolaylaştırır. Sistemin performansını daha iyi anlamak ve optimize etmek için kullanılacak modellerin geliştirilmesine olanak tanır. Yüzey tepki analizinin oluşturulmasına olanak tanır, elektroliz sistemi performansının değişkenliğini gösteren bir yüzey haritası oluşturur. Bu sayede harita, farklı işletme koşullarının sistemin performansına etkisini görselleştirir ve daha iyi bir anlayış sağlar. Ayrıca elektroliz sistemi performansının hızlı ve etkili bir şekilde optimize edilmesine olanak tanır ve işletme maliyetlerini azaltabilir [29,30]. Lotfi ve arkadaşları [31] alkali bir çözeltide “HER” için bir dendrit Ni-Cu ile modifiye edilmiş Ni köpük elektrotun elektrokatalitik aktivitesini araştırdı. Çalışma, Ni köpük substratın elektrokatalitik aktivitesini ve stabilitesini arttırmak için dendrit Ni-Cu elektrotunun sentez ve modifikasyon sürecini optimize etmeyi amaçlamaktadır. Ayrıca, HER için dendrit Ni-Cu elektrot modifiye Ni köpük substratın gelişmiş elektrokatalitik aktivitesinin altında yatan mekanizma araştırılmıştır. Ek olarak, çalışma, dendrit Ni-Cu elektrot modifikasyonunun Ni köpük alt tabakanın yüzey morfolojisi, kimyasal bileşimi ve elektrokimyasal özellikleri üzerindeki etkisine ilişkin öngörü sağlamayı amaçlamaktadır. Çalışma RSM analizi ile deneysel HER verimliliğini ortaya koyan bir araştırmadır. Esmailzadeh ve arkadaşları. [32] “HER” ve “OER” için iki işlevli bir elektrokatalizör olarak bir nikel selenid (NiSe) nano yapısını geliştirdi ve optimize etti. Çalışma, katalizörün biriktirme süresi, pH, sıcaklık vb. sentez parametrelerini kontrol ederek NiSe nano yapının elektrokimyasal performansını optimize etmek için RSM kullanmıştır. Deneysel karakterizasyon taramalı elektron mikroskobu (SEM), X-ışını kırınımı (XRD) ve elektrokimyasal ölçümler vb teknikleri kullanarak gerçekleştirilmiştir. NiSe nano yapısının morfolojisini, kristal yapısını ve elektrokatalitik aktivitesi çok yönlü araştırılmıştır. Umer ve arkadaşları [33] tek ve çok duvarlı karbon nanotüpler ile modifiye edilmiş titanyum dioksit (TiO₂) nanoparçacıklarının fotokatalitik hidrojen

üretim aktivitesi üzerindeki etkilerini yanıt yüzey metodolojisini (RSM) kullanarak optimize etmiştir. Karbon nanotüp/TiO₂ kompozitlerinin morfolojisini, kristal yapısını ve bileşimini aydınlatmak için X-ışını kırınımı (XRD), geçirimli elektron mikroskobu (TEM) ve Raman spektroskopisi teknikleri kullanılmıştır. Ayrıca, maksimum fotokatalitik hidrojen üretim aktivitesinin tespiti için kalsinasyon sıcaklığı, karbon nanotüp modifikasyonu ve reaksiyon süresi vb. işlem parametreleri RSM ile optimize edilmiştir.

Rothan ve arkadaşları [34] yaptıkları çalışmada amonyaktan hidrojen verimliliği için yanıt yüzey metodu ile optimizasyon gerçekleştirmişlerdir. Hidrojen verimliliğinde dikkate alınan değişkenleri değerlendirmek için elektrik gerilimi (90-110 V), amonyak akış hızı (30-150 L/saat) ve yukarı akış basıncı (0-100 kPa) gibi faktörleri YYM aracılığıyla deneyler kullanılarak incelenmişlerdir. Mu ve arkadaşları [35] glukozdan H₂ üretimini optimize etmek için merkezi bileşik tasarıma sahip Yanıt Yüzey Metodolojisi kullanılmıştır. H₂ üretimi üzerinde pH, sıcaklık ve glukoz konsantrasyonunun bireysel ve etkileşimli etkileri de değerlendirilmiştir. Maksimum H₂ verimi için optimum koşullar; sıcaklık 38.8 °C, pH 5.7 ve glukoz konsantrasyonu 9.7 g/L olarak bulunmuştur. Sıcaklık ve pH'nın lineer etkileri ile H₂ verimine olan kare etkileri anlamlı bulunmuştur.

Bu çalışmada ise nikel köpük katotların nikel-bakır-molibden (NiCuMo) ile modifikasyonu elektrokimyasal çöktürme ile gerçekleştirilmiş ve deneysel elektroliz hücresinin etkinliği RSM analizi ile optimize edilmiştir. Sistem etkinlik analizinde elektroliz potansiyeli ve süre değişken olarak seçilerek hidrojen gazı üretim hacmine ve yük miktarına etkileri araştırılmıştır.

2. YÖNTEM

2.1. Elektrolis Sisteminin Kurulumu

Ni köpük malzeme (NF - Sigma GF28024657-1EA) 1:1:0.16 cm boyutunda kesildi, ardından sisteme bağlamak için Ni tel ile tutturuldu. Önceki çalışmamızda belirtildiği üzere yüzey hazırlama

işlemleri gerçekleştirildi [28]. Katalizörlerin elektrokimyasal çöktürme işlemleri için Iviumstat Elektrokimyasal analiz cihazı kullanıldı ve katalizör miktarı 10 mg cm^{-2} olacak şekilde gerçekleştirildi. Çöktürme banyosu bileşimi %30 $\text{NiSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, %1,25 H_3BO_3 , %3 $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$, %3 MoNa_2O_4 , %0,2 NaCl 'dir. Hidrojen gazı hacmini belirlemek için anot olarak Pt ve katot olarak çalışma elektrotu (NiCuMo) ile iki elektrotlu bir elektroliz hücresi kullanıldı. Bu sistemin kurulumunda farklı derişimlerde (0,5; 1 ve 1,5 M) KOH çözeltisiyle doldurulan büretler katotların üzerine ters çevrilmiş ve sisteme çeşitli sabit potansiyeller (2.4, 2.7 ve 3.0 V) uygulanmıştır. Her bir potansiyel için bürette dolan hidrojen gazı farklı süreler (10, 20 ve 30 dakika) için belirlenmiştir. Hidrojen gazı üretiminde, tüm ölçüm sonuçları buhar basıncı düzeltilmesi yapılarak verilmiştir [28].

2.2. Yanıt Yüze Metolojisi (RSM)

Yapılan çalışma kapsamında, veri analizi Design Expert (deneme sürümü) ile gerçekleştirilmiştir ve ikinci dereceden model oluşumu için merkezi kompozit tasarımı tercih edilmiştir. Model oluşturulurken bağımsız değişkenler olarak süre ve elektrik voltajı seçilmiştir. Hidrojen hacmi ve yük miktarı ise bağımlı değişkenlerdir. Toplamda 13 deney yapılmıştır. Tüm deneysel denemeler, etkileşimsel etkiler, bireysel etkiler ve optimum koşulları incelemek için gerçekleştirilmiştir. Bağımsız değişkenler Çizelge 1'de gösterildiği gibi düşük (-1), orta (0) ve yüksek (+1) olmak üzere üç seviyede incelenmiştir. Modellemenin temel sonuçlarından biri olan cevap yüzey metodu denkleminin genel biçimi Eşitlik 1'de ifade edildiği şekilde hesaplanmıştır:

$$Y_i = \beta_0 + \beta_i X_i + \beta_{ii} X_{ii}^2 + \beta_{ij} X_i X_j \quad (1)$$

Burada, Y_i bağımlı değişken, β_0 , β_i , β_{ii} , β_{ij} model katsayıları, X_i ve X_j bağımsız değişkenlerdir.

Geliştirilen modelin uygunluğunu doğrulamak için Varyans analizi (ANOVA) kullanılmıştır. Modelin tahmin doğruluğu R^2 korelasyon katsayısı ile

ilişkilidir ve Fisher F testi istatistiksel anlamlılığını kanıtlamaktadır. p ve F değerleri de model terimlerini test etmek için kullanılır [24]. Çizelge 1, giriş parametrelerini ve seviyelerini göstermektedir.

Çizelge 1. Bağımsız parametreler ve seviyeleri

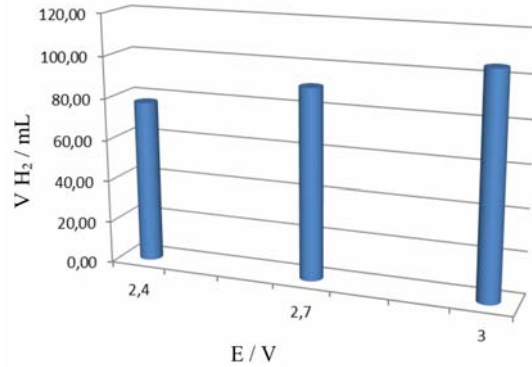
Sembol	Değişken	Birim	Seviye		
			-1	0	+1
A	Süre	dk	10	20	30
B	Elektrik Potansiyeli	Voltaj	2.4	2.7	3.0

3. ARAŞTIRMA BULGULARI

3.1. Elektrotların Deneysel Analizi

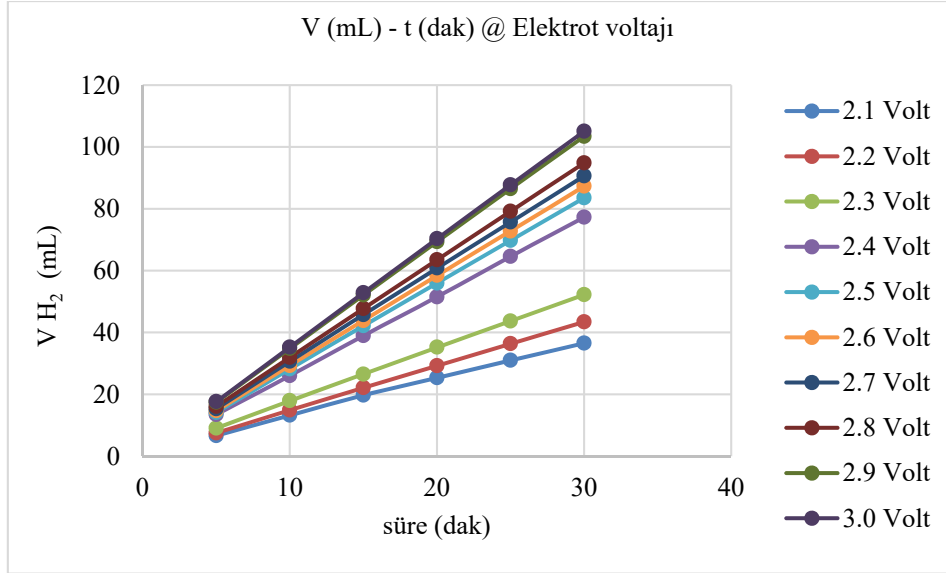
Elektroliz sistemi ile 1 M KOH çözeltisinde NiCuMo elektrot yüzeyinde farklı potansiyel değerlerinde 30 dakika boyunca üretilen hidrojen gazı hacimleri Şekil 1'de görülmektedir.

Şekil 1'de artan elektrik voltajı ile üretilen hidrojen gazı miktarının arttığı görülmektedir. 2,4; 2,7 ve 3 V için hidrojen gazı hacimleri sırasıyla 77,30; 90,67 ve 105,08 mL olarak tespit edilmiştir.



Şekil 1. Farklı potansiyellerde üretilen hidrojen gazı hacimleri

Elektroliz sisteminde elektroliz süresinin etkisinin tespiti için gerçekleştirilen deneylerden elde edilen veriler Şekil 2'de görülmektedir. Şekil 2'de çok daha geniş bir potansiyel aralığında (2,1 V'dan itibaren 3 V'a kadar) deneyler gerçekleştirilmiştir.



Şekil 2. Farklı elektroliz sürelerinde üretilen hidrojen gazı hacimleri

3.2. Yanıt Yüzey Metodu

Merkezi kompozit tasarımına göre, deneyler optimum kombinasyonu bulmak ve giriş parametrelerinin hidrojen hacmi ve yük miktarı üzerindeki etkilerini incelemek için yapılmıştır ve sonuçlar Çizelge 2'de verilmiştir. Hidrojen hacmi ve yük miktarı optimizasyonu ve tahmini için 2 bağımsız değişkenin üç farklı seviyesi kullanılmıştır. Eşitlik 2 ve 3'de sırasıyla hidrojen hacmi ve yük miktarı için 2. dereceden polinom

verilmiştir.

$$Y = 55.57 + 28.05A + 14.67B + 6.48AB - 0.4293A^2 + 3.62B^2 \quad (2)$$

$$Y = 481.23 + 240.66A + 123.27B + 57.65AB - 5.96A^2 + 35.94B^2 \quad (3)$$

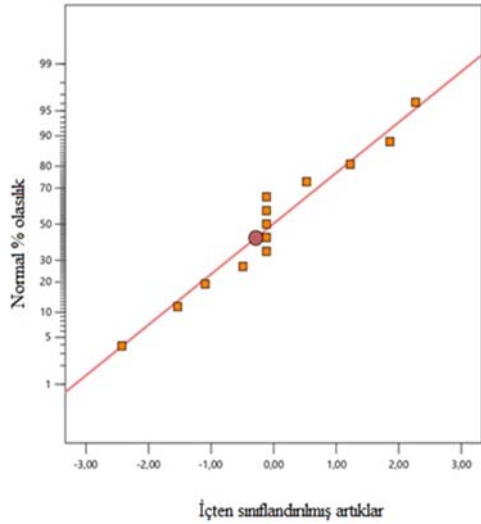
Burada; Y değeri Eşitlik 2 ve 3 için sırasıyla hidrojen hacmi ve yük miktarını, A süreyi, B voltaj değerini belirtmektedir.

Çizelge 2. Farklı deneysel denemeler için gerçek ve tahmin edilen çıktılar karşılaştırılması

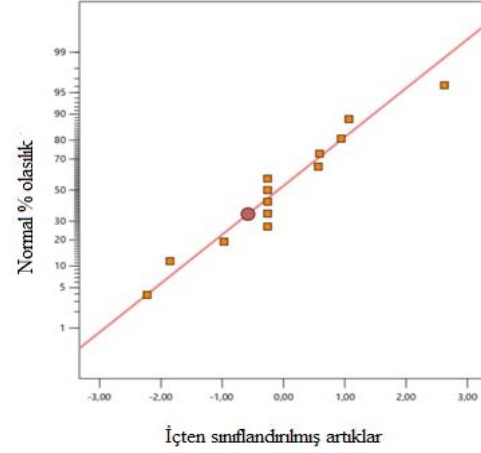
D deney No	A: Süre (dk)	B: Voltaj (V)	Deneysel hacim	Deneysel yük	RSM hacim	RSM yük
1	20	2,7	55,5	479,9	55,57	481,23
2	20	2,7	55,5	479,9	55,57	481,23
3	20	2,7	55,5	479,9	55,57	481,23
4	20	2,7	55,5	479,9	55,57	481,23
5	30	2,4	66,2	572,1	65,67	570,63
6	20	2,7	55,5	479,9	55,57	481,23
7	20	3,0	74,4	642,8	73,85	640,44
8	20	2,4	44,3	398,2	44,52	393,91
9	10	2,7	28,1	245,5	27,09	234,94
10	10	3,0	38,2	331,7	38,90	336,5
11	30	2,7	82,5	711,7	83,19	715,61
12	10	2,4	22,2	199,5	22,52	205,26
13	30	3,0	108,1	934,9	107,95	932,46

3.3. Elektrotların Deneysel Analizlerinin Optimizasyonu

Ölçülen verilerin varsayımının normalitesini doğrulamak için normal olasılık grafikleri oluşturulmuştur. Bu artıkların dağılımını kontrol etmek için kullanılan tanıtıcı grafiklerden birisidir. Şekil 3 ve 4’den de görüldüğü üzere hidrojen hacmi ve yük değerleri için artıklar normal bir dağılım izlemektedir ve bu da varyans analizinin (ANOVA) geçerliliği için önemlidir [35,36].



Şekil 3. Hidrojen hacmi normal artık grafikleri



Şekil 4. Yük için normal artık grafikleri

Modelin anlamlılığını bulmak için kullanılan varyans analizi (ANOVA) Çizelge 3’te verilmiştir. P-değeri ve F-değeri, sırasıyla modelin önemini ve tutarlılığını göstermektedir. Çizelge 3’e göre F değeri 2842,54 ve p değeri <0,0001 ise tasarlanan modelin önemli olduğu anlamına gelmektedir. ANOVA analizinde, p-değeri 0,05’ten küçük olan modeldeki faktörlerin önemli olduğu kabul edilir. Çizelge 3’e göre p değeri 0,05’ten küçük olduğu için çok önemli kabul edilmiştir. Model için belirlenen korelasyon sayıları (R^2) incelendiğinde, hidrojen hacmi ve yük miktarı için tahmini R^2 değerleri sırasıyla 0,9956’dır ve 0,9955 olarak elde edilmiştir.

Çizelge 3. Model ve faktörlere ait F değerleri ve p değerleri

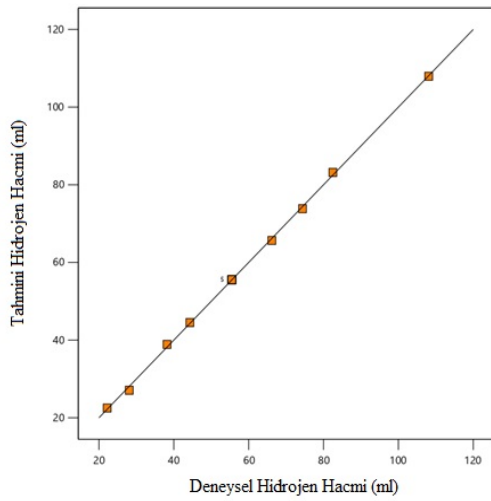
Kaynak	Hidrojen hacmi		Yük	
	F-değeri	P-değeri	F-değeri	P-değeri
Model	3149,72	< 0.0001	2842,54	< 0.0001
A-Süre	11956,03	< 0.0001	10830,55	< 0.0001
B-Potansiyel	3268,77	< 0.0001	2849,14	< 0.0001
AB	424,73	< 0.0001	415,46	< 0.0001
A ²	1,29	0,2936	3,06	0,1235
B ²	91,70	< 0.0001	111,50	< 0.0001

Çizelge 4’e baktığımızda hidrojen hacmi ve yük arasındaki farklar 0,2’den az olduğu için makul bir değeri için tahmini ve ayarlanmış R^2 değerleri uyum içerisinde.

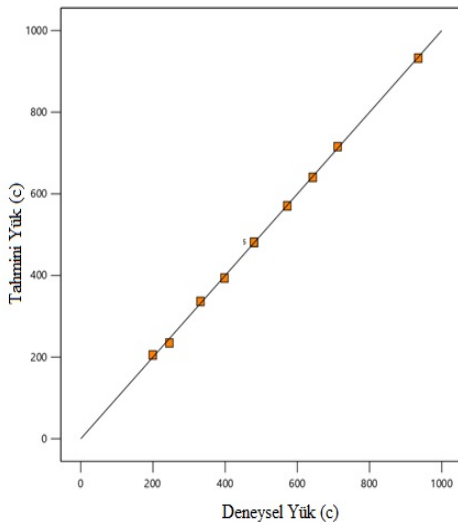
Çizelge 4. Modellerin özeti

	Hacim	Yük		Hacim	Yük
Std. Sapma	0,6284	5,66	R^2	0,9996	0,9995
Ortalama	57,04	495,07	Ayarlanmış R^2	0,9992	0,9992
C.V. %	1,10	1,14	Tahmini R^2	0,9956	0,9955
			Yeterli Kesinlik	200,1282	189,2281

Şekil 5 ve 6 sırasıyla deneyle karşı tahmin edilen hidrojen hacmi ve yük miktarının grafiklerini göstermektedir. Model terimlerinin deneysel verileri, tahmin değerlerini elde etmek için RSM model denklemine eklenmiştir. Şekilden de görüldüğü üzere diyagonal çizgiye doğru tahmin edilen ve gerçek hidrojen hacmi ve yük değerlerinin birbiriyle olan yakınlığı modelin geçerli olduğunu göstermektedir [37].



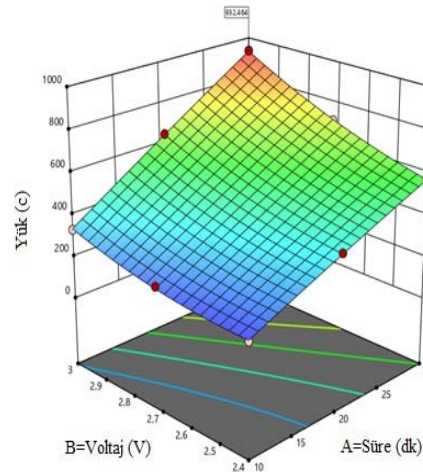
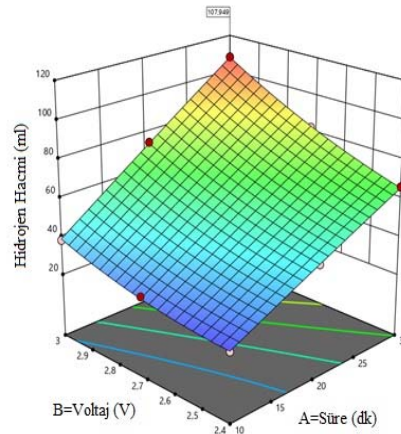
Şekil 5. Hidrojen hacmi için gerçek ve tahmin edilen değerler



Şekil 6. Yük için gerçek ve tahmin edilen değerler

3.4. Proses Parametrelerinin Hidrojen Hacmi ve Yük Miktarı Üzerindeki Etkileri

Bağımsız değişkenlerin sistem üzerindeki etkileri bağımlı değişkenler aracılığı ile yapılmaktadır. Bu yüzden de bağımlı değişkenlerin belirlenmesi büyük bir önem kazanmaktadır [28]. Elektroliz süresi ve elektrot voltajının hidrojen hacim miktarına ve yük miktarına karşı çizilen 3 boyutlu yanıt yüzey grafikleri sırasıyla Şekil 7 ve Şekil 8'de verilmiştir. Eşitlik 2 ve 3'deki A ve B değerlerinin pozitif olması artan süre ve voltaj miktarı ile hidrojen hacmi ve yük miktarını arttırdığını göstermektedir.

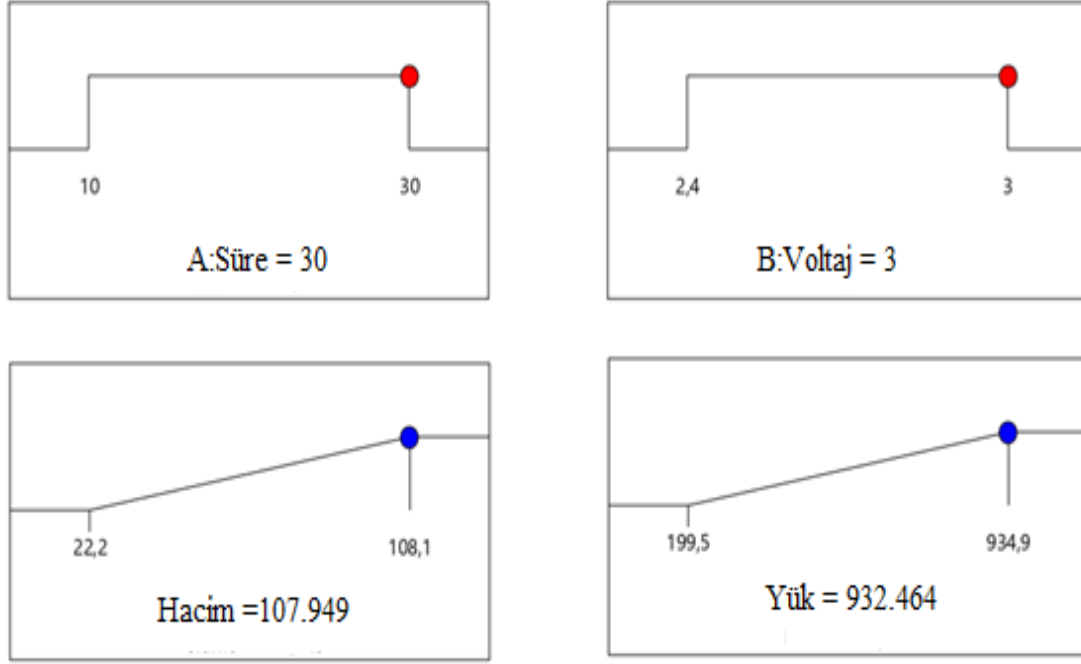


Şekil 7. Hacim miktarına ve yük miktarına karşı çizilen 3 boyutlu yanıt yüzey grafikleri

3.5. Model Doğrulama Deneyleri

Yanıt yüzey metodu ile modellemede üretim parametreleri için optimum değerleri belirlemek yapılan çalışmaların en önemli bir kısımlarından

birisidir. Design-Expert (deneme sürümü) programı kullanılarak oluşturulan ampirik model, maksimum hidrojen hacmine ve yük miktarına ulaşmak için en iyi koşulları belirlemiştir.



Şekil 8. Yanıt yüzey metodu ile elde edilen optimum değerler

Maksimum hidrojen verimi ve yük miktarı için yanıt yüzey metodu tarafından önerilen veri seti Çizelge 5'de verilmiştir. İstatistiksel analiz sonucunda, modelin optimal parametrelerini 30 dakika ve 3 voltaj olarak bulmuştur. İkinci dereceden model tarafından belirlenen optimum koşullarda maksimum hidrojen hacmi 107.949 mL ve maksimum yük miktarı 932.464 c olarak tespit edilmiştir.

Ampirik modelin ve optimizasyon bulgularının

doğruluğunu test etmek için doğrulama testleri gerçekleştirilmiştir. Her yanıt için, optimum doğrulama deneylerinden elde edilen sonuç ile modelden elde edilen tahmini sonuçlar karşılaştırılmıştır. Çizelge 5'den de görüldüğü üzere hidrojen hacmi ve yük değeri için hesaplanan hata sırasıyla 2,71 ve 0,5 olarak belirlenmiştir. Elde edilen % hata değerlerine göre, doğrulama testlerinden elde edilen sonuçlar ile tahmini sonuçlar arasında istatistiksel olarak önemli bir farkın olmadığı belirlenmiştir.

Çizelge 5. Yanıt yüzey metodu tarafından önerilen veri seti

Etkileyen Faktörler		H ₂ Hacmi		Yük		% Hata	
Süre (dk)	Voltaj (V)	DeneySEL	Tahmini	DeneySEL	Tahmini	H ₂ Hacmi	Yük
30	3	105,083	107,949	927,5	932,464	2,71	0,5

4. SONUÇLAR

Bu çalışmada, nikel köpük katotların nikel-bakır-molibden (NiCuMo) ile modifikasyonu elektrokimyasal çöktürme ile gerçekleştirilmiş olup hidrojen hacmi ve yük miktarını belirlemede proses parametrelerinin tahmini ve optimizasyonu yanıt yüzey metodu başarıyla uygulanmıştır. Yanıt yüzey metodu ile yüksek oranda hidrojen hacmi ve yük miktarı elde edilmiştir. Elde edilen sonuçlar aşağıda verildiği şekildedir:

- Yanıt yüzey metoduna göre elde edilen optimum üretim parametreleri 30 dakika ve 3V elektrik potansiyeli olarak gözlemlenmiştir. Bu optimum parametrelerde 107,949 mL hidrojen hacmi ve 932,964 c oranında yük miktarı elde edilmiştir.
- ANOVA test sonuçlarına göre elektrik potansiyeli hidrojen hacmi ve yük miktarı için en önemli parametre olarak tespit edilmiştir.
- Yanıt yüzey metodunun R² değerleri hidrojen hacmi ve yük miktarı için sırasıyla 0,9996 ve 0,9995 olarak elde edilmiştir.
- Doğrulama testi sonuçları, deneysel olarak elde edilen hidrojen hacmi ve yük miktarı sonuçları ile tahmin edilen hidrojen hacmi ve yük miktarı sonuçları arasında iyi bir uyum olduğunu göstermiştir.

5. KAYNAKLAR

1. Kumar, S.S., Lim, H., 2022. An Overview of Water Electrolysis Technologies for Green Hydrogen Production. *Energy Reports*, 8, 13793-13813.
2. Mohammed, H.J., Ali, N.A., 2019. Fabricating and Study Effect of the Concentrations Electrolyte for An Alkaline Electrolysis Cell. *The 7th International Conference on Applied Science and Technology, (ICAST'2019)*, 27-28 March 2019, Katbala City, Iraq, 30002-30006.
3. Batool, M., Hameed, A., Nadeem, M.A., 2023. Recent Developments on Iron and Nickel-based Transition Metal Nitrides for Overall Water Splitting: A Critical Review. *Coordination Chemistry Reviews*, 480, 215029.
4. Dezhdar, A., Assareh, E., Agarwal, N., Bedakhanian, A., Keykhah, S., Fard, G.Y., Zadsar, N., Aghajari, M., Lee, M., 2023. Transient Optimization of A New Solar-wind Multi-generation System for Hydrogen Production, Desalination, Clean Electricity, Heating, Cooling, and Energy Storage using TRNSYS. *Renewable Energy* 208, 512-537.
5. Dincer, I., 2023. Hydrogen 1.0: A new Age. *International Journal of Hydrogen Energy*.
6. Wang, Y., Lu, Z., Chen, M., Liang, D., Wang, J., 2022. Hydrogen Production from Catalytic Steam Reforming of Toluene Over Trace of Fe and Mn Doping Ni/Attapulgate. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, 165, 105584.
7. Novotny, V., 2023. Blue Hydrogen can be A Source of Green Energy in the Period of Decarbonization. *International Journal of Hydrogen Energy*, 48(20), 7202-7218.
8. Gopinath, M., Marimuthu, R., 2022. A Review on Solar Energy-based Indirect Water-splitting methods for Hydrogen Generation. *International Journal of Hydrogen Energy*, 47(89), 37742-37759.
9. Monga, D., Shetti, N.P., Basu, S., Kakarla, R.R., 2023. Recent Advances in Various Processes for Clean and Sustainable Hydrogen Production. *Nano-Structures & Nano-Objects*, 33, 100948.
10. Dokhani, S., Assadi, M., Pollet, B.G., 2023. Techno-economic Assessment of Hydrogen Production from Seawater. *International Journal of Hydrogen Energy*, 48(26), 9592-9608.
11. Omarov, S.O., Martinson, K.D., Matveyeva, A.N., Chebanenko, M.I., Nevedomskiy, V.N., Popkov, V.I., 2022. Renewable Hydrogen Production via Glycerol Steam Reforming over Ni/CeO₂ Catalysts Obtained by Solution Combustion Method: The Effect of Ni Loading. *Fuel Processing Technology*. 236, 107429.
12. Shejale, A.D., Yadav, G.D., 2022. Steam reforming of bio-alcohols over Ni-M (Cu, Co, Pt)/MCF-S (MgO, La₂O₃, CeO₂) for Renewable and Selective Hydrogen Production: Synergistic Effect of MCF Silica and Basic Oxides on Activity and Stability Profiles. *Catalysis Today*, In press.
13. Yuvaraj, A.L., Santhanaraj, D., 2013. A Systematic Study on Electrolytic Production of

- Hydrogen Gas by using Graphite as Electrode. *Materials Research*, 17(1), 83-87.
14. Okonkwo, P.C., Barhoumi, E.M., Mansir, I.B., Emori, W., Bhowmik, H., 2022. Effect of Electrode Material on the Hydrogen Production Using a Low-cost Home-made Alkaline Electrolyzer. *Vacuum*, 198, 110878.
 15. Yang, J.H., Xu, X., Chen, M., Yang, D., Lu, H., Sun, Y., Shao, C., Song, Q., Zhang, J., Gao, L., Zhang, Y., 2021. Morphology-Controllable Nanocrystal β -Ni(OH)₂/NF Designed by Hydrothermal Etching Method as High-Efficiency Electrocatalyst for Overall Water Splitting. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 882, 115035.
 16. Ding, Q., Zou, X., Ke, J., Dong, Y., Cui, Y., Lu, G., Ma, H., 2023. S-scheme 3D/2D NiCo₂O₄@g-C₃N₄ Hybridized System for Boosting Hydrogen Production from Water Splitting. *Renewable Energy*, 203, 677-685.
 17. Hao, J., Liu, J., Wu, D., Chen, M., Liang, Y., Wang, Q., Wang, L., Fu, X.Z., Luo, J.L., 2021. In Situ Facile Fabrication of Ni(OH)₂ Nanosheet Arrays for Electrocatalytic Co-production of Formate and Hydrogen from Methanol in Alkaline Solution. *Applied Catalysis B: Environmental*, 281, 119510.
 18. Kong, X., Lv, F., Zhang, H., Yu, F., Wang, Y., Yin, L., Huang, J., Feng, Q., 2022. NiO Load K₂Fe₄O₇ Enhanced Photocatalytic Hydrogen Production and Photo-Generated Carrier Behavior. *Journal of Alloys and Compounds*, 903, 163864.
 19. Cai, W., Li, Y., Zheng, Q., Song, M., Ma, P., Fang, W., Song, W., Lai, W., 2023. Hydrogenative Rearrangement of Bioderived Furfurals to Cyclopentanones over Ni/Nb₂O₅ Catalysts: Promotion Effect of Reducible NbOx and Water. *Fuel*, 338, 127345.
 20. Liu, F., Tang, Y., Zhao, J., Bai, Y., Chen, J., Tian, L., Shah, S.S.A., Bao, S.J., 2022. Carbon Dots-induced Carbon-coated Ni and Mo₂N Nanosheets for Efficient Hydrogen Production. *Electrochimica Acta*, 424, 140671.
 21. Liu, S., Li, F., Li, T., Cao, W., 2023. High-Performance ZnIn(2)S(4)/Ni(dmgh)(2) for Photocatalytic Hydrogen Evolution: Ion Exchange Construction, Photocorrosion Mitigation, and Efficiency Enhancement by Photochromic Effect. *Journal of Colloid and Interface Science*, 642, 100-111.
 22. Xu, C., Yang, X., Feng, K., Zhang, M., Yang, L., Yin, S., 2023. Metal-organic Framework Derived Ni/Mo₂C/Mo₂TiC₂Tx@NC as an Efficient Electrocatalyst for Enhanced Hydrogen Production. *International Journal of Hydrogen Energy*, 48(46), 17553-17564.
 23. Krishnan, A., Ajith, A., Krishnan, A.V., Saji, R.E., Syamli, S., Shibli, S.M.A., 2023. Ni-based Electro/Photo-Catalysts in HER - A Review. *Surfaces and Interfaces*, 36, 102619.
 24. Bilgiç, G., Bendeş, E., Öztürk, B., Atasever, S., 2023. Recent Advances in Artificial Neural Network Research for Modeling Hydrogen Production Processes. *International Journal of Hydrogen Energy*, 48(50), 18947-18977.
 25. Ince, A.C., Serincan, M.F., Colpan, C.O., Pasaogullari, U., 2023. A Mini Review on Mathematical Modeling of Co-electrolysis at Cell, Stack and System Levels. *Fuel Processing Technology*, 244, 107724.
 26. Kombe, E.Y., Lang'at, N., Njogu, P., Malessa, R., Weber, C.T., Njoka, F., Krause, U., 2022. Process Modeling and Evaluation of Optimal Operating Conditions for Production of Hydrogen-rich Syngas from Air Gasification of Rice Husks Using Aspen Plus and Response Surface Methodology. *Bioresource Technology*, 361, 127734.
 27. Okolie, J.A., Epelle, E.I., Nanda, S., Castello, D., Dalai, A.K., Kozinski, J.A., 2021. Modeling and Process Optimization of Hydrothermal Gasification for Hydrogen Production: A Comprehensive Review. *The Journal of Supercritical Fluids*, 173, 105199.
 28. Özgür ,C., Mert, M.E., 2022. Prediction and Optimization of the Process of Generating Green Hydrogen by Electrocatalysis: A study Using Response Surface Methodology. *Fuel*, 330, 125610.
 29. Pourali, M., Esfahani, J.A., 2022. Performance Analysis of a Micro-scale Integrated Hydrogen Production System by Analytical Approach, Machine Learning, and Response Surface Methodology. *Energy*, 255, 124553.
 30. Salahi, F., Zarei-Jelyani, F., Farsi, M., Rahimpour, M.R., 2023. Optimization of Hydrogen Production by Steam Methane

- Reforming over Y-promoted Ni/Al₂O₃ Catalyst Using Response Surface Methodology. *Journal of the Energy Institute*, 108, 101208.
31. Lotfi, N., Shahrabi, T., Yaghoubinezhad, Y., Darband, G.B., 2019. Surface Modification of Ni Foam by the Dendrite Ni-Cu Electrode for Hydrogen Evolution Reaction in an Alkaline Solution. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 848, 113350.
32. Esmailzadeh, S., Shahrabi, T., Yaghoubinezhad, Y., Darband, B.G., 2021. Optimization and Characterization of Pulse Electrodeposited Nickel Selenide Nanostructure as a Bifunctional Electrocatalyst by Response Surface Methodology. *International Journal of Hydrogen Energy*, 46(36), 18898-18912.
33. Umer, M., Tahir, M., Usman Azam, M., Tasleem, S., Abbas, T., Muhammad A., 2019. Synergistic Effects of Single/Multi-walls Carbon Nanotubes in TiO₂ and Process Optimization Using Response Surface Methodology for Photo-catalytic H₂ Evolution. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 7(5), 103361.
34. Rothan, A.Y., Ali, F.F., Issakhov, A., Selim, M.M., Li, Z., 2021. Optimization Analysis of Hydrogen Production Using Ammonia Decomposition. *Journal of Molecular Liquids*, 335, 116190.
35. Mu, Y., Zheng, X., Yu, H., 2009. Determining Optimum Conditions for Hydrogen Production from Glucose by an Anaerobic Culture Using Response Surface Methodology (RSM). *International Journal of Hydrogen Energy*, 34, 7959-7963.
36. Adam I.K., Aziz A.R.A., Yusup S., Heikal M., Hagos F., 2016. Optimization of Performance and Emissions of a Diesel Engine Fuelled with Rubber Seed Palm Biodiesel Blends using Response Surface Method. *Asian Journal of Applied Sciences*, 4(2), 401-421.
37. Ali R.Y., Ali F.F., Issakhov A., Selim M.M., Li Z., 2021. Optimization Analysis of Hydrogen Production Using Ammonia Decomposition. *Journal of Molecular Liquids*, 335, 116190.
38. Munusamy T.D., Chin S.Y., Khan M.M.R., 2022. Optimization of Process Parameters for Photoreforming of Hydrogen Evolution via Response Surface Methodology (RSM): A Study Using Carbon@exfoliated g-C₃N₄. *Chemical Engineering Research and Design*, 177, 513-525.